



# KOREAN PATENT ABSTRACTS(KR)

Document Code: A

(11) Publication No. 1020000009735 (43) Publication Date. 20000215

(21) Application No. 1019980030344 (22) Application Date. 19980728

(51) IPC Code:

C04B 35/495

(71) Applicant:

KOREA INSTITUTE OF SCIENCE AND TECHNOLOGY

(72) Inventor:

KIM, HYO TAE

KIM, IN TAE

KIM, YUN HO

PARK, JAE GWAN

PARK, JAE HWAN

(30) Priority:

(54) Title of Invention

DIELECTRIC CERAMICS COMPOSITION FOR HIGH FREQUENCY

(57) Abstract:

PURPOSE: A composition comprising 1 mole  $\text{MgNb}_2\text{O}_6$  and 0-1 mole  $\text{TiO}_2$  as a main composition and 0-0.4 wt.% of  $\text{MO}_3$  ( $M^{6+} = \text{W, Mo, Cr, Se, Te, and Po}$ ) as additives is provided which can be sintered at a relatively low temperature.

CONSTITUTION: The composition comprises  $\text{MgNb}_2\text{O}_6 + x\text{TiO}_2$  (where  $x = 0-1.0$ ) and 0-0.4 weight% of  $\text{MO}_3$  (where M is one element selected from W, Mo, Cr, Se, Te, and Po). For an example, 1 mole  $\text{MgO}$  and 1 mole  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  are mixed by a wet ball-milling method and calcined at 1,100 °C for 4 hr. The solution added with 2 wt.% PVA binder is sprayed on the calcined powder to give granules with a size of about 200 micro meters. A disk sample with a diameter of 10 mm and a thickness of 4.8 mm is formed with granules at pressure of 98 Mpa, held at 300-500 °C for above 3 hr to remove the binder and calcined at 1,150-1,250 °C for 4 hr in the atmosphere at a heating speed of 5 °C/min. The sintered sample is grinded with a SiC abrasive paper to be a ratio of diameter to thickness of about 0.45. The composition has a relatively lower sintering temperature (1,200 °C), higher quality coefficient (QX f is more than 40,000 GHz) and dielectric constant (epsilon is more than 25), more stable temperature coefficient ( $\tau f = -49$  from to +38 ppm/ °C) than conventional high-frequency dielectric composition.

COPYRIGHT 2000 KIPO

(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 등록특허공보(B1)

(51) Int. Cl. 6		(11) 등록번호	10-0302455
C04B 35 /495		(24) 등록일자	2001년07월03일
(21) 출원번호	10-1998-0030344	(65) 공개번호	특2000-0009735
(22) 출원일자	1998년07월28일	(43) 공개일자	2000년02월15일
(73) 특허권자	한국과학기술연구원 박호군		
(72) 발명자	서울 성북구 하월곡2동 39-1 김효태 서울특별시 성북구 하월곡동 39-1 2/3 36호 박재환 서울특별시 노원구 중계동 505 롯데아파트 11-504 김인태 경기도 성남시 분당구 수내동 양지마을 금호아파트 105-601 박재환 서울특별시 마포구 연남동 246-15 김윤희 서울특별시 노원구 공릉2동 254번지 태릉우성아파트 6동 803호		
(74) 대리인	박장원		
심사관 : 반응병			
(54) 고주파용 유전체 세라믹스 조성물			

요약

본 발명은 고주파용 세라믹스 조성물에 관한 것으로, 특히 1 mole의  $MgNb_2O_6$ 에 대해 각각 0 ~ 1 mole의  $TiO_2$ 를 조합으로 하는 것을 주 조성으로 하고 첨가제로서 MQ ( $M_Q = W, Mo, Cr, Se, Te$  및  $Po$ )가 각각 0 ~ 0.4 wt%로 구성되는 것을 특징으로 하는 유전체 세라믹스 조성물에 관한 것으로, 기존의 고주파 유전체 조성보다 비교적 낮은 소결온도 (1,200℃)이면서 높은 품질계수 ( $Q \times f > 40,000$  GHz)와 유전상수 ( $\epsilon_r > 25$ ) 및 안정된 온도계수 ( $\tau_f = -49 \sim +38$  ppr/℃)의 우수한 고주파 유전특성이  $MgNb_2O_6TiO_2$ 와 같은 비교적 저가의 원료로 구현되는 것을 특징으로 한다.

명세서

발명의 상세한 설명

발명의 목적

발명이 속하는 기술 및 그 분야의 종래기술

본 발명은 고주파용 유전체 세라믹스 조성물에 관한 것으로, 특히 1 mole의  $MgNb_2O_6$ 에 대해 0~1 mole의  $TiO_2$ 를 조합으로 하는 것을 주조성으로 하고 첨가제로서 WQ가 0~0.4 wt.%로 구성되는 것을 특징으로 하는 유전체 세라믹스 조성물에 관한 것이다.

최근 이동 통신 및 위성통신의 급속한 발전과 더불어 고주파 집적회로 또는 유전체 공진기의 재료로서 고주파용 유전체 세라믹스 수요가 크게 증가하고 있다.

고주파용으로 사용되는 유전체 세라믹스의 주요 특성으로는 가능한 한 높은 유전상수( $\epsilon_r > 25$ ) 및 안정 (stable)하고도 조절 가능한 (tunable) 공진 주파수의 온도 계수 ( $\tau_f$ )가 요구된다.

지금까지 알려진 대표적인 고주파용 유전체 조성은 (Zr, Sn) $Ti_2O_6$ 계, BaO- $TiO_2$ 계, (Mg, Ca) $TiO_3$ 계, Ba-페로브스카이트계 {Ba( $Zn_{1/3}Ta_{2/3}$ ) $O_3$ , Ba( $Mg_{1/3}Ta_{2/3}$ ) $O_3$ , Ba( $Zn_{1/3}Nb_{2/3}$ ) $O_3$ 등}이다. 그러나, 이들 조성은 대부분 1,300 ~ 1,500℃의 고온에서 소결 가능하거나, 유전 상수가 낮거나 또는 고가의 원료를 사용하여야 한다.

#### 발명이 이루고자하는 기술적 과제

상술한 문제점을 극복하기 위해, 본 발명은 상기 조성보다 비교적 낮은 소결 온도(1,200℃)이면서도 높은 품질계수( $Q \times f > 40,000$  GHz)와 유전상수 ( $\epsilon_r > 25$ ) 및 안정된 온도계수 ( $\tau_f = -49 \sim +38$  ppm/℃)의 우수한 고주파 유전특성을 비교적 저가의 원료로부터 구현할 수 있도록 하는 것을 목적으로 한다.

#### 발명의 구성 및 작용

이에, 본 발명은,  $MgNb_2O_6 + xTiO_2$  (여기서  $x = 0 \sim 1.0$ )으로 이루어지는 고주파 유전체 세라믹스 조성물을 제공한다.

또한, 상기 조성물에 MQ (M = W, Mo, Cr, Se, Te, Po 중 선택되는 어느 한 종)가 0 ~ 0.4 wt%로 첨가된 고주파 유전체 세라믹스 조성물을 제공한다.

이하에서는 본 발명에 의한 고주파 유전체 세라믹스 조성물의 대표적인 실시예를 나타낸다. 본 발명의 주조성으로서  $MgNb_2O_6$ 는 1 mole의 MgO (>99%)와 1 mole의  $Nb_2O_5$ (>99%)를 습식 불 밀링법으로 혼합하여 건조 후 1100℃에서 4시간 하소하여 합성하였다. 이 하소 분말을 다시 24시간 분쇄한 다음 건조한 분말에 2 wt%의 PVA 바인더를 첨가한 수용액을 분사하여 약 200  $\mu m$  크기의 조립 (granule)으로 만들어 98 MPa의 압력으로 직경 10 mm, 두께 4.8mm인 디스크 시편을 형성한다. 성형 시편은 300 ~ 500℃에서 3 시간 이상 유지시켜 바인더를 제거하고 나서 1150~1250℃로 대기중에서 4 시간 동안 소성한다. 이때, 승온 속도는 각각 5℃/min으로 하였다. 소결 시편은 SiC 연마지 (#1,500)로 연마하여 시편의 직경 대비 두께의 비가 약 0.45가 되도록 하였다. 고주파 유전 특성은 네트워크 분석기 (network analyzer : HP 8720C)를 써서  $T_{60}$  모드에서 측정하였으며, 유전상수는 하키 콜만 (Hakki - Coleman)법으로 그리고 품질계수는 오픈 캐비티 (open cavity)법으로, 공진 주파수의 온도 계수는 인바 캐비티 (invar cavity)를 써서 +20~+70℃의 온도 범위에서 측정하였다. 표 1의 실시예 1번은 1200℃에서 4시간 소결한 시편의 고주파 유전특성을 나타낸 것이다. 실시예에서 순수한  $MgNb_2O_6$ 의 유전 상수는 약 22, 품질계수는 74,100 그리고 온도계수는 -15 ppr/℃로 나타났다. 이 조성은 품질 계수는 우수하지만 유전 상수가 낮고 온도 계수가 비교적 커서 (일반적으로  $< \pm 10$  ppm/℃가 요구됨) 이를 좀더 개선할 필요가 있다. 따라서, 본 발명에서는 온도계수를 0 ppm/℃ 부근으로 안정화시키기 위해 온도 계수가 +430 ppr/℃이고 품질계수가 10,000 (4 GHz, 즉  $Q \times f = 40,000$  GHz) 그리고 유전상수가 105인  $TiO_2$ 를 온도 보상 물질로 선택하였다. 본 발명에서는  $MgNb_2O_6$  1 mole에 대해 0 ~ 1.0 mole의  $TiO_2$ 를 첨가하는 조성을 고안하였으며, 그 결과를 실시예인 표 1의 실시예 2번 내지 6번에 나타내었다.

MgNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> + xTiO<sub>2</sub>의 마이크로파 유전특성

No.	x (mol)	유전상수 (ε <sub>r</sub> )	품질계수 (Q× f GHz)	공진 주파수의 온도 계수 (τ f: ppm/°C)
1	0	22.1	74,100	-15
2	0.2	23.0	83,900	-49
3	0.4	26.6	78,000	-37
4	0.6	32.4	41,800	0
5	0.8	39.9	23,900	+38
6	1.0	47.5	11,600	+82
* 1200°C, 4시간 공기중에서 소결				

그 결과 본 발명의 목적대로 유전 상수가 약 22에서 32로, 온도계수는 0 pp/°C 부근에서 TiO<sub>2</sub>의 양에 따라 온도 보상 특성을 보였다. 한편, 품질 계수는 순수 MgNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>보다 감소한 값을 보였는데, 이것은 첨가된 TiO<sub>2</sub>가 MgNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>와 복합체 구조를 이루고, 또한 일부의 Ti<sub>4</sub>이온이 Nb<sub>5</sub>를 치환함에 따른 반도체화 (소결 시편이 순수 MgNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>보다 약간 어두운 색을 띠었음)에 기인하는 것으로 분석되었다. 따라서, 후자의 원인에 따른 품질계수의 저하를 개선하기 위해 전하 보상의 기구 (charge compensation mechanism)를 적용하여 양이온인 M(M = W, Mo, Cr, Se, Te, Po)인 산화물 (MO<sub>3</sub>)을 소량 (0~0.4 wt.%) 첨가하였다. 그 결과, 소결 시편의 색이 밝은 색으로 변함으로써 본 발명의 의도가 작용함을 확인할 수 있었다. 더 구체적으로는 표 2와 같이 첨가물 중에서 대표적인 W를 첨가 (WO<sub>3</sub>로서)한 경우 시료의 고주파 유전 특성으로서, 실시예인 표 2의 7 ~ 12번과 같이 품질 계수가 약 20% 향상되었다. 한편, 이들 첨가물에 의한 유전상수의 감소는 매우 작았으며, 온도계수는 양으로 미소하게 이동하였는데 이에 따른 추가적인 온도보상은 실시예인 표 1의 결과를 적용하여 TiO<sub>2</sub>의 양을 미소 변화 (약간 감소)시킴으로써 0 ppr/°C 부근으로 조절 가능하다.

여기서 상기 첨가제로는 W, Mo, Cr, Se, Te 및 Po로 구성되는 군으로부터 선택되는 어느 하나이어도 본 발명의 효과는 충분히 달성될 수 있다.

[표 2]

(MgNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> + 0.6TiO<sub>2</sub>) + yM(M = W)O<sub>3</sub>의 마이크로파 유전특성

No.	y (wt%)	유전상수 (ε <sub>r</sub> )	품질계수 (Q× f GHz)	공진 주파수의 온도 계수 (τ f: ppm/°C)
7	0.10	31.6	43,000	+6
8	0.15	31.9	45,000	+5
9	0.20	31.5	50,100	+4
10	0.25	31.5	47,800	+4
11	0.30	31.5	46,800	+8

12	0.40	32.2	44,600	+17
* 1200℃, 4시간 공기 중에서 소결.				

#### 발명의 효과

본 발명에 따르면, 기존의 고주파 유전체 조성보다 비교적 낮은 소결온도 (1,200℃)이면서 높은 품질계수 ( $QX > 40,000$  GHz)와 유전상수 ( $\epsilon_r > 25$ ) 및 안정된 온도계수 ( $\tau_f = -49 \sim +38$  ppr/℃)의 우수한 고주파 유전특성이 비교적 저가의 원료로 구현될 수 있다.

#### (57) 청구의 범위

청구항 1. 다음 식으로 이루어지는 것을 특징으로 하는 고주파 유전체 세라믹스 조성물:

$MgNb_2O_6 + xTiO_2$ , 여기서  $x = 0 \sim 1.0$ .

청구항 2. 제 1 항에 있어서, 상기 조성물에 MQ (M = W, Mo, Cr, Se, Te, Po 중 선택되는 어느 한 종)가 0 ~ 0.4 wt%로 첨가된 것을 특징으로 하는 고주파 유전체 세라믹스 조성물.